

## 2-CYANOACRYLATE COMPOSITION

Patent Number: JP4063885  
Publication date: 1992-02-28  
Inventor(s): HARUTAKE MASAMITSU; others: 02  
Applicant(s): ALPHA TECHNO CO LTD  
Requested Patent: ☐ JP4063885  
Application Number: JP19900175076 19900701  
Priority Number(s):  
IPC Classification: C09J4/04  
EC Classification:  
Equivalents: JP3057236B2

---

### Abstract

---

**PURPOSE:** To obtain the title compsn. with large white hiding power without spoiling storage stability by compounding 2-cyanoacrylate with specified microspheres.

**CONSTITUTION:** The title compsn. is prepared by compounding 2-cyanoacrylate (e.g. ethyl 2-cyanoacrylate) with expanded and hollow synthetic resin microspheres insoluble in the compd. (e.g. elastic and hollow microspheres contg. isobutane as a blowing agent and obtd. by expanding microspheres wherein a vinylidene-acrylonitrile copolymer serves as an outer shell component).

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

## ⑫ 公開特許公報(A) 平4-63885

⑤ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 平成4年(1992)2月28日

C 09 J 4/04

J B S

7242-4 J

審査請求 未請求 請求項の数 4 (全8頁)

⑥ 発明の名称 2-シアノアクリレート系組成物

② 特 願 平2-175076

② 出 願 平2(1990)7月1日

|         |            |     |                    |
|---------|------------|-----|--------------------|
| ⑦ 発 明 者 | 治 武        | 政 実 | 滋賀県甲賀郡水口町嵯峨1522    |
| ⑦ 発 明 者 | 大 塚        | 正 則 | 滋賀県栗太郡栗東町糺843      |
| ⑦ 発 明 者 | 福 澤        | 稔   | 滋賀県甲賀郡甲西町中央4丁目65番地 |
| ⑦ 出 願 人 | 株式会社アルファ技研 |     | 大阪府茨木市西駅前町9番30号    |
| ⑦ 代 理 人 | 弁理士 大石 征郎  |     |                    |

## 明 細 書

組成物に関するものである。

## 1 発明の名称

従来の技術

2-シアノアクリレート系組成物

通常の2-シアノアクリレート系瞬間接着剤は無色透明の液状物であるが、用途によっては黒色、白色、その他の色に着色したい場合がある。

## 2 特許請求の範囲

(1) 2-シアノアクリレート(A)に、該2-シアノアクリレート(A)に不溶解の合成樹脂膨脹中空微小球(B)を配合してなる2-シアノアクリレート系組成物。

たとえば、被着体がカーボンブラックを配合して成形した黒色のゴム成形物、各種の顔料を配合して成形したプラスチック成形物の如き着色物である場合、あるいは被着体が大理石である場合、これらの被着体の接着を同系統の色の瞬間接着剤を用いて行いたいという要望がある。

(2) 2-シアノアクリレート(A)100重量部に対する膨脹中空微小球(B)の配合割合が0.05～10重量部である請求項1記載の組成物。

また、2-シアノアクリレート系瞬間接着剤が、被着体の突き合せ接合や空隙を埋める目的に用いられる場合、被着体からはみ出るおそれがある場合、接着後に切断等により上記瞬間接着剤自体が見えるような使い方をする場合などにおいては、外観上の点から瞬間接着剤の色を被着体の色と合わせることが望ましいことが多い。

(3) 2-シアノアクリレート(A)に、該2-シアノアクリレート(A)に不溶解の合成樹脂膨脹中空微小球(B)と着色剤(C)とを配合してなる2-シアノアクリレート系組成物。

(4) 接着剤である請求項1または3記載の組成物。

## 3 発明の詳細な説明

## 産業上の利用分野

本発明は、着色した2-シアノアクリレート系

あるいは逆に、作業工程上の理由から、被着体



の色と明瞭に区別できる色の瞬間接着剤を使用することにより、瞬間接着剤の塗布状態を把握することが望まれる場合もある。

瞬間接着剤を本来の接着目的でなく色付け被覆の目的に用いるとき、たとえばガラス面やタイル面に盛り上がった絵付けを施すような使い方をするときも、種々の色に着色された瞬間接着剤を用いることが必要となる。

上に例示したようなケースにおいては、２－シアノアクリレート系瞬間接着剤として顔料を配合したものが用いられる。濃い着色を得ようとするときは、顔料の配合量もそれに見合せて多くすることが必要である。

ところが、瞬間接着剤に顔料等を配合すると、２－シアノアクリレートの重合が促進され、該接着剤の安定性が損なわれる傾向がある。

特開昭 60-199084 号公報には、剥離および衝撃強度増大用添加剤である無機化合物粉末、樹脂粉末等の粉末として、硫酸、リン酸、有機酸無水物または酸基を有する有機酸に接触させ

ている。これらの公報の発明も瞬間接着剤の着色を直接の目的とするものではないが、カーボン粉末の添加により接着剤は黒色に着色されることになる。

そのほか、特開昭 60-99182 号公報には、水との反応で酸を生成するか水を酸性化することによりシアノアクリレートに対する重合性を阻止できる物質で処理された金属粉またはカーボン粉末を、シアノアクリレートに配合した導電性硬化性組成物が示されている。

#### 発明が解決しようとする課題

先にも述べたように、着色された２－シアノアクリレート系瞬間接着剤として顔料を配合したものを得ようとするとき、接着剤の保存安定性が損なわれる傾向がある。濃い着色を得るべく顔料の配合量を多くするときはその傾向が顕著となるので、顔料の配合量にはおのずから限界があり、淡色のものしか得られない。

そこで、上述の特開昭 60-199084 号公報や特開昭 60-118776 号公報等に記述の



たものを用いることにより、瞬間接着性を失うことなく添加剤の添加目的が達成できる接着剤組成物が示されている。この公報の発明は瞬間接着剤の着色を直接の目的とするものではないが、粉末の具体例として、カーボンブラック、グラファイト、シリカ、アルミナ、炭化ケイ素、窒化ホウ素、サイアローン、酸化ケイ素、タルクなどがあげられている。

特開昭 60-118776 号公報には、 $\alpha$ -シアノアクリレートに、酸処理した金属粉またはカーボン粉末を添加した導電性  $\alpha$ -シアノアクリレート系接着剤組成物が示されており、酸処理をした粉末を用いることによって  $\alpha$ -シアノアクリレートの重合を抑制し、保存安定性の低下を防止している。また、同様の趣旨のものとして、特開昭 61-155482 号公報には、２－シアノアクリレートに、酸を接触させた導電性粉末およびフュームドシリカを含有させた２－シアノアクリレート系接着性組成物が示されており、導電性粉末の具体例の一つとしてカーボンがあげられ

発明を参考に、顔料を酸処理すれば保存安定性が向上することが期待できる。しかしながらこの方法は、２－シアノアクリレートの重合を酸処理を施した顔料表面の酸により抑制しようとするものであるため、接着剤の瞬間接着性を損なうおそれがあり、瞬間接着性を確保すべく酸処理の程度を緩くすると、今度は保存安定性が不足するようになるなど、バランスをとることが難しいという問題点がある。特に顔料を高配合する場合には、両性能を確実に確保した瞬間接着剤の設計が難しい。

特開昭 60-99182 号公報の発明も酸処理にかかるものであり、同様の問題点がある。

現在市販の着色瞬間接着剤の中には、白色あるいは黒色に着色したものもあるが、濃さが不足しており、しかも被着体間にはさんで薄膜化すると着色の程度が顕著に減少し、透明に近くなる傾向がある（ガラス間にはさんで目視すると一目瞭然である）。

本発明は、このような状況に鑑み、２－シアノ

アクリレートの速硬化性、接着性等に悪影響を及ぼさないでその着色を図ること、また着色と同時に耐衝撃性、切削加工性等の性質を付与することを目的になされたものである。

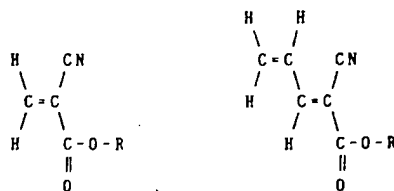
#### 課題を解決するための手段

本発明の2-シアノアクリレート系組成物は、2-シアノアクリレート(A)に、該2-シアノアクリレート(A)に不溶解の合成樹脂膨張中空微小球(B)または該膨張中空微小球(B)と着色剤(C)とを配合してなるものである。

以下本発明を詳細に説明する。

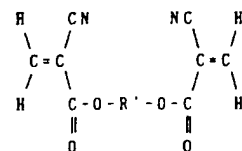
#### 2-シアノアクリレート(A)

2-シアノアクリレート(A)としては、式

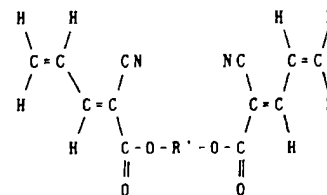


シエチル 2-シアノアクリレート、エトキシエチル 2-シアノアクリレート、2-クロロエチル 2-シアノアクリレート、シクロヘキシル 2-シアノアクリレート、エトキシカルボメチル 2-シアノアクリレート、トリフルオロエチル 2-シアノアクリレート、1-シアノ-1-カルボメトキシブタジエン-1, 3, 1-シアノ-1-カルボエトキシブタジエン-1, 3, 1-シアノ-1-カルボイソプロトキシブタジエン-1, 3, エチレングリコール ビス(2-シアノアクリレート)、トランス-2-ブテン-1, 4-ジオール ビス(2-シアノアクリレート)、2, 5-ヘキサジオール ビス(2-シアノアクリレート)、エチレングリコール ジ(1-シアノブタジエン-1, 3)カルボン酸エステル、プロピレングリコール ジ(1-シアノブタジエン-1, 3)カルボン酸エステル、ジエチレングリコール ジ(1-シアノブタジエン-1, 3)カルボン酸エステルなどがあげられる。

#### 合成樹脂膨張中空微小球(B)



または



で表わされる2-シアノアクリレートにおけるRがアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シクロアルキル基、アリール基、アルコキシアルキル基、アルコキシカルボアルキル基、テトラヒドロフルフリル基などであり、R'がアルキレン基であるものがいずれも用いられる。具体例としては、メチル 2-シアノアクリレート、エチル 2-シアノアクリレート、プロピル 2-シアノアクリレート、ブチル 2-シアノアクリレート、アリル 2-シアノアクリレート、メトキ

合成樹脂膨張中空微小球(B)としては、発泡剤を内含しかつ熱可塑性樹脂を外殻成分とする熱膨張性微小球を、直径で2~5倍程度になるまで発泡させたものが好適に使用される。

ここで合成樹脂としては、ハロゲン化ビニル、ハロゲン化ビニリデン、(メタ)アクリロニトリル、スチレン系モノマー、(メタ)アクリレート系モノマー、酢酸ビニル、ブタジエン、ビニルピリジン、クロロブレンなどのモノマーを(共)重合させて得られる重合体、たとえば、塩化ビニル-塩化ビニリデン共重合体、塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体、塩化ビニル-アクリロニトリル共重合体、スチレン-アクリロニトリル共重合体、スチレン-メチルメタクリレート共重合体、メチルメタクリレート-アクリロニトリル共重合体、メチルメタクリレート-エチルメタクリレート共重合体、メチルメタクリレート-オ-クロロスチレン共重合体、アクリロニトリル-メタクリロニトリル共重合体、ポリアクリロニトリルなどがあげられ、さらに他のコモノマーや化敏



材を含んでいてもよい。これらの中では、塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体が特に重要である。

発泡剤としては、たとえば、トリクロロフルオロメタン、ジクロロフルオロメタン、ジクロロフルオロエタン、ジクロロトリフルオロエタン、トリクロロトリフルオロエタン、ジクロロペンタフルオロプロパン等の特定または代替フロン類、 $n$ -ペンタン、イソペンタン、ネオペンタン、ブタン、イソブタン、ヘキサン、石油エーテル等の炭化水素類、塩化メチル、塩化メチレン、ジクロロエチレン、トリクロロエタン、トリクロロエチレン等の塩素化炭化水素などがあげられる。

熱膨張性微小球の粒径は、 $1\mu\text{m} \sim 1\text{mm}$ 程度、望ましくは $2\mu\text{m} \sim 0.5\text{mm}$ 、殊に $5 \sim 50\mu\text{m}$ とするのが適当である。

熱膨張性微小球中に占める発泡剤の割合は、 $5 \sim 30$ 重量%程度が適当である。

この熱膨張性微小球を不活性液体（水、アルコール等）中に分散させ、加熱した不活性ガス（空

気、窒素等）中に噴霧すると、まず不活性液体が蒸発し、ついで熱膨張性微小球が膨張し、合成樹脂膨張中空微小球(B)が得られる。加熱温度は、不活性液体が蒸発するまでは高温とすることができ、不活性液体が蒸発した段階では、微小球が過膨張して潰れることを防止するために、 $180^\circ\text{C}$ 以下、殊に $150 \sim 80^\circ\text{C}$ 程度に設定することが望ましい。この操作は、通常噴霧乾燥機中で行われ、該乾燥機の前部における不活性ガス温度は高く、後部における不活性ガスの温度は低く設定するようにする。

合成樹脂膨張中空微小球(B)は、2-シアノアクリレート(A)に対し不溶解であることが要求されるので、そのような熱可塑性樹脂を外殻成分として選択して合成樹脂膨張中空微小球(B)を製造するか、あるいは製造の適当な段階で架橋処理等により2-シアノアクリレート(A)に対して不溶解となるようにする。

#### 着色剤(C)

2-シアノアクリレート(A)に上記の膨張中空

微小球(B)を配合した組成物は白色となる。従って、白色以外の着色を得ようとする場合には、上記膨張中空微小球(B)と共に各種の染料からなる着色剤(C)を配合する。なお白色の着色を得ようとする場合でも、他の白色の着色剤を併用しても差支えない。

この目的の着色剤(C)の例を下記に列挙する。

#### 白色着色剤

酸化チタン、亜鉛華、炭酸カルシウムなど

#### 黒色着色剤

カーボンブラック、鉄黒、アニリンブラックなど

#### 黄色着色剤

黄鉛、カドミウムエロー、黄色酸化鉄、ベンジジンエロー、ハンザエロー、クロモフタールエロー、オイルエローなど

#### 橙色着色剤

赤口黄鉛、クロムバーミリオン、カドミウムオレンジ、ピラゾロンオレンジなど

#### 赤色着色剤

ベンガラ、カドミウムレッド、パーマネントレッド4R、ピラゾロンレッド、レーキレッドC、カーミン6B、オイルレッド、マーキュリーレッド、ビグメントスカーレット3B、パーマネントレッドF5R、クロモフタールレッド、ローダミンレーキ、ボルド10B、ボンマルーン、キナクリドンレッドなど

#### 紫色着色剤

コバルトバイオレット、ミネラルバイオレット、キナクリドンバイオレット、アンスラキノバイオレットなど

#### 青色着色剤

紺青、群青、コバルトブルー、フタロシアニンプール、インダスレンブルーなど

#### 緑色着色剤

クロムグリーン、フタロシアニングリーンなど

#### 特殊着色剤

アルミニウム、ブロンズ、真珠など

#### 配合割合

2-シアノアクリレート(A) 100重量部に対する合成樹脂膨張中空微小球(B)の配合割合は、0.05~10重量部程度、望ましくは0.1~8重量部程度とするのが適当である。膨張中空微小球(B)の配合割合が余りに少ないときは着色効果等の添加効果が不足し、一方余りに大きいときは増粘作用が過大となって実用性を欠くようになる。ただし、パテ状の瞬間接着剤を得ようとするときは、15重量部程度までの配合が可能である。

膨張中空微小球(B)と共に着色剤(C)を併用するときは、該着色剤(C)の配合割合は着色目的が達成される限り任意に設定できる。一般に染料を用いるときは0.001~1重量部以下程度のごく少量で足り、顔料を用いるときはたとえば0.05~10重量部程度の範囲から選択する。

#### 他の添加剤

本発明の組成物には、保存安定剤、有機溶剤、可塑剤、増粘剤、チクソトロピー性改善剤、耐熱性付与剤、極性低下剤、接着強化剤、硬化促進

剤、硬化抑制剤、カーボネート化合物(アルキレンカーボネート、アルキルカーボネート等)などを必要に応じ添加することができる。

ここで保存安定剤としては、たとえば、亜硫酸ガス、三酸化イオウ、酸化窒素、炭酸ガス、スルホン酸類、ハイドロキノン、ハイドロキノンモノメチルエーテル、トリメチルジハイドロキノン、カテコール、メーブチルカテコール、ピロカテコール、ピロガロール、p-メトキシフェノール、スルトン類、アルキルサルファイトなどがあげられる。

有機溶剤としては、たとえば、炭化水素、ケトン、エーテル、エステル、含窒素溶剤、含ハロゲン溶剤などがあげられる。

可塑剤としては、たとえば、フタル酸エステル、リン酸エステル、アジピン酸エステル、セバシン酸エステル、安息香酸エステル、シュウ酸エステル、フマル酸エステル、イタコン酸エステルなどがあげられる。

増粘剤としては、たとえば、ポリシアノアクリ

レート、ポリメタクリレート、ポリアクリレート、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、メタクリレート-ブタジエン-スチレン共重合体、アクリレート-アクリロニトリル共重合体、ポリ酢酸ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ニトロセルロース、ポリジアリルフタレートなど2-シアノアクリレートと相溶性のあるポリマーがあげられる。

#### 用途

本発明の2-シアノアクリレート系組成物は、速硬化性を有する接着剤として、すなわち、木材、金属、セラミックス、ガラス、プラスチック、ゴム、塗装面、生体、紙、皮革、繊維または繊維製品、皮革その他の繊維製品、フィラメントまたはフィラメント束などの接着目的に有用である。そのほか、絵付け剤、間隙または空隙の充填剤、被覆剤、土木用硬化剤などにも用いることができる。また成形物とすることもできる。

作用および発明の効果

本発明の組成物にあっては、合成樹脂膨張中空微小球(B)は2-シアノアクリレート(A)には溶解せずに組成物およびその硬化物を白色となし、その際の隠蔽力が大きい。

着色剤(C)を併用するときは、合成樹脂膨張中空微小球(B)により不透明化が図られると共に、着色剤(C)によりその色に応じた着色がなされる。ただし、合成樹脂膨張中空微小球(B)の白色が加わるので、やや白味がかった着色となる。

従って、被着体が着色物である場合、該被着体の接着を同系統の色の瞬間接着剤を用いて行うことができる。被着体の突き合せ接合や空隙を埋める目的に用いるとき、被着体からはみ出るおそれがあるとき、接着させた後に瞬間接着剤自体が見えるような使い方をするときにも、瞬間接着剤の色を被着体の色と合わせることができる。また逆に、作業工程上の理由から被着体の色と明瞭に区別できる色の瞬間接着剤を使用することにより、瞬間接着剤の塗布状態を把握することが望まれる場合にも対処することができる。さらには、



瞬間接着剤を本来の接 目的でなく色付け被覆の目的に用いるときも、それに対処することができる。

合成樹脂膨張中空微小球(B)は、2-シアノアクリレート(A)本来の速硬化性に悪影響を与えず、また保存安定性を低下させない。

2-シアノアクリレート(A)に対する合成樹脂膨張中空微小球(B)の配合は、物性面でも興味がある。すなわち、従来の2-シアノアクリレート系瞬間接着剤は硬い硬化物を与えるので硬化による収縮度が大きく、切削加工性の点でも限界があったが、合成樹脂膨張中空微小球(B)の配合により収縮率は3~5%と非常に小さくなり、切削加工性も顕著に向上する。また耐透水性も向上する。

#### 実施例

次に実施例をあげて本発明をさらに説明する。以下「部」とあるのは重量部である。

##### 実施例 1

合成樹脂膨張中空微小球(B)として、スウェー

加工性、耐衝撃強度は次の通りであった。

- ・ セットタイム：30~40 sec (Fe-Fe)
- ・ 硬化物の切削加工性：カッターで鉛筆のように削ることができる。
- ・ 引張剪断強度：189 kg/cm<sup>2</sup> (Fe-Fe)

また、この瞬間接着剤を常温で1年間保存した後、同様にしてセットタイム、硬化物の切削加工性、引張剪断強度を測定した。結果は次の通りであった。

- ・ セットタイム：35~45 sec (Fe-Fe)
- ・ 硬化物の切削加工性：カッターで鉛筆のように削ることができる。
- ・ 引張剪断強度：195 kg/cm<sup>2</sup> (Fe-Fe)

##### 比較例 1

市販の白色瞬間接着剤の白色度、セットタイム、硬化物の切削加工性および耐衝撃強度を調べた。

この瞬間接着剤は白色であったが、やや透明感があり、隠蔽力はそれほど大きくはなかった。またこの瞬間接着剤をガラス板に滴下した後、もう

デンのエクспанセル社が製造し、日本ファイライト株式会社が販売する「エクспанセル461DE」を用意した。「エクспанセル461DE」は、発泡剤としてのイソブタンを内含し、塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体を外殻成分とする微小球を膨張させた弾性を有する真円の膨張中空微小球であり、平均粒径は約40μm、嵩比重は約0.02、真比重は約0.05である。

2-シアノアクリレート(A)の一例としてのエチル 2-シアノアクリレート(安定剤として微量のヒドロキノンおよび亜硫酸ガスを含むもの)100部に、増粘剤としてのポリメチルメタクリレート23部と上記の合成樹脂膨張中空微小球(B)2部を配合して瞬間接着剤を調製した。

この瞬間接着剤は透明感を全く有しない白色であり、ガラス板に滴下した後、もう1枚のガラスで圧着して薄膜化したときも完全に白色で、透明感を有していなかった。

この瞬間接着剤のセットタイム、硬化物の切削

1枚のガラスで圧着して薄膜化したときは、白色は消え、ほぼ透明となってしまった。

この瞬間接着剤のセットタイム、硬化物の切削加工性、引張剪断強度は次の通りであった。

- ・ セットタイム：55~60 sec (Fe-Fe)
- ・ 硬化物の切削加工性：カッターで削ることは困難。
- ・ 引張剪断強度：180 kg/cm<sup>2</sup> (Fe-Fe)

##### 実施例 2

実施例1において、合成樹脂膨張中空微小球(B)2部と共に、赤色染料(日本化薬株式会社製のTD-FB)0.06部を配合した。

得られた瞬間接着剤はピンク色をしており、ガラス板に滴下した後、もう1枚のガラスで圧着して薄膜化したときも、同じピンク色を保っていた。

この瞬間接着剤のセットタイム、硬化物の切削加工性、引張剪断強度は、実施例1の場合とほぼ同じであった。

実施例 3~4

実施例1において、合成樹脂膨張中空微小球(B)2部と共に、青色染料(チバガイギー社製B L N)0.06部または黄色染料(日本化薬株式会社製I N E F G)0.06部を配合した。

得られた瞬間接着剤はやや白味がかかった青色またはやや白味がかかった黄色をしており、ガラス板に滴下した後、もう1枚のガラスで圧着して薄膜化したときも、同じ色を保っていた。

この瞬間接着剤のセットタイム、硬化物の切削加工性、引張剪断強度は、実施例1の場合とほぼ同じであった。

#### 実施例5

実施例1において、合成樹脂膨張中空微小球(B)2部と共に、カーボンブラック0.06部を配合した。

得られた瞬間接着剤は黒色をしており、ガラス板に滴下した後、もう1枚のガラスで圧着して薄膜化したときも、同じ色を保っていた。

この瞬間接着剤のセットタイム、硬化物の切削加工性、引張剪断強度は、実施例1の場合とほぼ

同じであった。

この瞬間接着剤はカーボンブラックを含んでいるが、その配合量が少ないので、保存安定性は良好である。

特許出願人 株式会社アルファ技研

代理人 弁理士 大石 征郎



### 手続補正書 (自発)

平成 3年10月 1日

特許庁長官 探沢 亘 殿

#### 1. 事件の表示

平成2年特許願第175076号

#### 2. 発明の名称

2-シアノアクリレート系組成物

#### 3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 大阪府茨木市西原前町9番30号

名称 株式会社アルファ技研

代表者 田中 義信

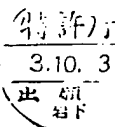
#### 4. 代理人 〒533

住所 大阪市東淀川区東中島1丁目19番11号  
大城ビル (電話06-323-0028 番)

氏名 (8788) 弁理士 大石 征郎

#### 5. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の欄



#### 6. 補正の内容

(1) 本願明細書10頁3行の「2~3倍程度」の次に「あるいはそれ以上」を挿入する。

(2) 同10頁20行~21頁1行の「化教材」を「架橋剤」と訂正する。

(3) 同11頁2行の「塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体」を「ポリ塩化ビニリデン、塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体、スチレン-アクリル系モノマー共重合体、ポリアクリロニトリル」と訂正する。

(4) 同11頁14行の「粒径は、1μm」を「粒径は広い範囲から選択しうるが、0.1μm」と訂正する。

(5) 同12頁11行目と12行目の間に次の文章を挿入する。

「合成樹脂膨張中空微小球(B)は、発泡剤を用いて製造する方法のほか、たとえば合成樹脂エマルジョンにモノマーを仕込んで粒子にモノマーを吸収膨張させた状態で、吸収されたモノマーを粒子の外側から重合、架橋するなど、重合過程におい



て製造することもでき、いずれにせよ中空であって、中実の微小球よりも膨張していて比重が小さくなっていればよい。」

(6) 同13頁1行の「組成物は白色となる。」を「組成物は、膨張中空微小球(B)として着色したものをを用いた場合以外は通常白色となる。」と訂正する。

以上